

**This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- **BLACK BORDERS**
- **TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- **FADED TEXT**
- **ILLEGIBLE TEXT**
- **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- **COLORED PHOTOS**
- **BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS**
- **GRAY SCALE DOCUMENTS**

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁶ :

H01M 8/02, 8/04

8/06

A1

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 96/20506

(43) Internationales
Veröffentlichungsdatum:

4. Juli 1996 (04.07.96)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP95/04951

(22) Internationales Anmeldedatum: 14. December 1995
(14.12.95)

(30) Prioritätsdaten:
P 44 46 841.5 27. December 1994 (27.12.94) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):
MTU MOTOREN- UND TURBINEN-UNION
FRIEDRICHSHAFEN GMBH [DE/DE]; D-88040
Friedrichshafen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KRAUS, Peter [DE/DE];
Mozarting 20, D-85598 Baldham (DE). HUPPMANN,
Gerhard [DE/DE]; Am Mühlbach 4, D-83620 Feldkirchen-
Westerham (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: CA, JP, US, europäisches Patent (AT,
BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL,
PT, SE).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

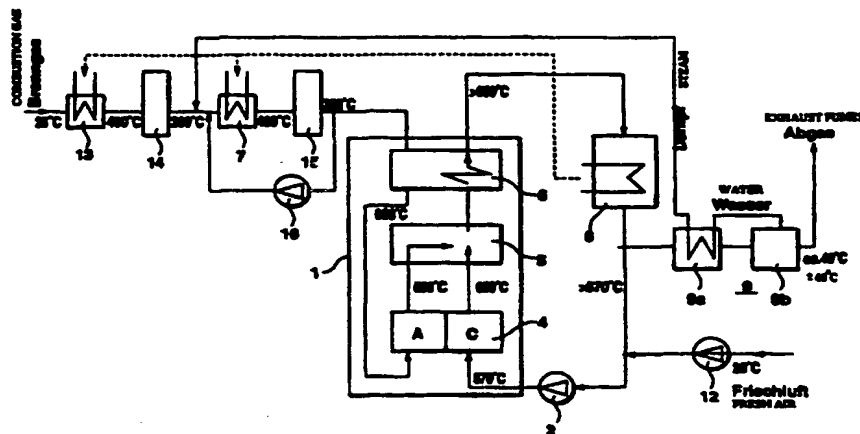
Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen
Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen
eintreffen.

(54) Title: FUEL CELL MODULAR ARRANGEMENT WITH FUEL CELL STACKS, CATALYTIC COMBUSTION DEVICE AND REFORMER INTEGRATED IN AN INSULATING PROTECTIVE HOUSING

(54) Bezeichnung: BRENNSTOFFZELLENMODUL, BEI DEM ZELLENSTAPEL, KATALYTISCHE VERBRENNUNGSEINRICHTUNG UND REFORMER IN EINEM ISOLIERENDEN SCHUTZGEHÄUSE ZUSAMMENGEFASST SIND

(57) Abstract

A fuel cell modular arrangement has one or several fuel cell stacks (4) enclosed in a thermally insulating protective housing (2), an anode inlet for supplying combustion gas to the anodes of the fuel cells, an anode outlet for carrying away the burned combustion gas from the anodes, a cathode inlet for supplying cathode gas to the cathodes of the fuel cells and a cathode outlet for carrying away the spent cathode gas from the cathodes. The fuel cell modular arrangement is coupled to a catalytic combustion device (5) for burning combustible residues of the burned combustion gas and to a reformer (6) for reforming the combustion gas that is supplied to the anode inlet of the fuel cells. The catalytic combustion device (5) and the reformer (6) are contained together with the fuel cell modular arrangement in the thermally insulating protective housing (1).



(57) Zusammenfassung

Brennstoffzellenmodul mit einer durch in einem oder mehreren Brennstoffzellenstapeln (4) angeordneten Brennstoffzellen gebildeten und von einem thermisch isolierenden Schutzgehäuse (2) umgebenen Brennstoffzellenanordnung mit einem Anodeneingang zur Zuführung von Brenngas zu den Anoden der Brennstoffzellen, einem Anodenausgang zur Abführung des verbrannten Brenngases von den Anoden, einem Kathodeneingang zur Zuführung von Kathodengas zu den Kathoden der Brennstoffzellen und einem Kathodenausgang zur Abführung des verbrauchten Kathodengases von den Kathoden, wobei die Brennstoffzellenanordnung mit einer katalytischen Verbrennungseinrichtung (5) zur Verbrennung brennbarer Restbestandteile des verbrannten Brenngases sowie einer Reformierungseinrichtung (6) zur Reformierung des dem Anodeneingang der Brennstoffzellen zuzuführenden Brenngases gekoppelt ist, wobei die katalytische Verbrennungseinrichtung (5) und die Reformierungseinrichtung (6) mit der Brennstoffzellenanordnung in dem thermisch isolierenden Schutzgehäuse (1) zusammengefaßt angeordnet sind.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AM	Armenien	GB	Vereinigtes Königreich	MX	Mexiko
AT	Österreich	GE	Georgien	NE	Niger
AU	Australien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BB	Barbados	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BE	Belgien	HU	Ungarn	NZ	Neuseeland
BF	Burkina Faso	IE	Irland	PL	Polen
BG	Bulgarien	IT	Italien	PT	Portugal
BJ	Benin	JP	Japan	RO	Rumänien
BR	Brasilien	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
BY	Belarus	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CA	Kanada	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KR	Republik Korea	SG	Singapur
CG	Kongo	KZ	Kasachstan	SI	Slowenien
CH	Schweiz	LI	Liechtenstein	SK	Slowakei
CI	Côte d'Ivoire	LK	Sri Lanka	SN	Senegal
CN	Kamerun	LR	Liberia	SZ	Swasiland
CO	China	LT	Litauen	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
EE	Estland	MG	Madagaskar	UG	Uganda
ES	Spanien	ML	Mali	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	MN	Mongolei	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MR	Mauritanien	VN	Vietnam
GA	Gabon	MW	Malawi		

BRENNSTOFFZELLENMODUL BEI DEM ZELLENSTAPEL, KATALYTISCHE VERBRENNUNGSEINRICHTUNG UND REFORMER IN EINEM ISOLIERENDEN SCHUTZGEHÄUSE ZUSAMMENGEFASST SIND

Die Erfindung betrifft ein Brennstoffzellenmodul mit einer durch in einem oder mehreren Brennstoffzellenstapeln angeordnete n Brennstoffzellen gebildeten und von einem thermisch isolierend n Schutzgehäuse umgebenen Brennstoffzellenanordnung mit einem Anodeneingang zur Zuführung von Brenngas zu den Anoden der Brennstoffzellen, einem Anodenausgang zur Abführung des verbrannten Brenngases von den Anoden, einem Kathodeneingang zur Zuführung von Kathodengas zu den Kathoden der Brennstoffzellen und einem Kathodenausgang zur Abführung des verbrauchten Kathodengases von den Kathoden, wobei eine katalytische Verbrennungseinrichtung zur Verbrennung brennbarer Restbestandteile des verbrannten Brenngases sowie eine Reformiereinrichtung zur Reformierung des dem Anodeneingang der Brennstoffzellen zuzuführenden Brenngases vorgesehen sind.

Bisher bekannte Anlagen mit Hochtemperaturbrennstoffzellen, wie Brennstoffzellen mit Alkalikarbonat-Schmelzelektrolyten (MCFC-Zellen) sind aus einer Vielzahl von untereinander gastechnisch und regelungstechnisch verschalteten einzelnen Anlagenkomponenten aufgebaut. Dies mag vor allem für die Konzeption von Versuchs- und Testanlagen eine geeignete und praktikable Technik darstellen, ist jedoch aus Gründen der großen Komplexität, mangelnder thermodynamischer Effizienz und Kosteneffizienz nicht der richtige Weg, um wirtschaftlich Anlagen zu bauen. Neuere Kostenschätzungen für nach diesen Prinzipien aufgebaute Anlagen zeigen, daß selbst unter der Annahme von in Großserie produzierten Komponenten die sogenannte "Balance of Plant", also die Anlagenperipherie etwa zwei Drittel bis drei Viertel der gesamten Investitionskosten beansprucht. Diese Peripheriekomponenten sind keine sogenannten "repeating parts" und würden so-

1 mit auch in Zukunft keine nennenswerte Kostendegression erfahren. Weiterhin sind bei dieser herkömmlichen Bauweise die auftretenden Wärmeverluste nur mit einem enormen Aufwand für thermische Isolierung in Grenzen zu halten.

5 Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es daher, ein Brennstoffzellenmodul zu schaffen, das eine wesentliche Verminderung der Komplexität der Brennstoffzellenanlage gestattet.

10 Diese Aufgabe wird gemäß der vorliegenden Erfindung dadurch gelöst, daß die katalytische Verbrennungseinrichtung und die Reformierungseinrichtung mit der Brennstoffzellenanordnung in dem thermisch isolierenden Schutzgehäuse zusammengefaßt angeordnet sind.

15 Ein wesentlicher Vorteil des erfindungsgemäßen Brennstoffzellenmoduls ist eine kostengünstige, serienmäßige Herstellung der Hauptkomponenten einer Brennstoffzellenanlage in einem Modul zusammengefaßt. Ein weiterer sehr beträchtlicher Vorteil ist eine wesentliche Erhöhung des Wirkungsgrads der das erfindungsgemäße Brennstoffzellenmodul enthaltenden Anlage durch Verminderung der thermischen Verluste. Ein weiterer Vorteil ist der verminderte Aufwand bei der Verschaltung der
20 Hauptkomponenten der Brennstoffzellenanlage mit der dann noch notwendigen verbleibenden Anlagenperipherie, verbunden mit einer beträchtlichen Verminderung des Aufwands bei der thermischen Isolierung der Anlage.

25 Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung sind die katalytische Verbrennungseinrichtung, die Reformierungseinrichtung und die Brennstoffzellenanordnung ohne den Strömungsquerschnitt zwischen diesen Komponenten verengende Rohrleitungen direkt miteinander verbunden. Der Vorteil hiervon ist eine beträchtliche Verminderung der Strömungsverluste.

Gemäß einer weiteren Ausführungsform des erfindungsgemäßen Brennstoffzellenmoduls ist die katalytische Verbrennungseinrichtung in dem Kathodenkreislauf zwischen dem Kathodenausgang und dem Kathodeneingang der Brennstoffzellenanordnung geschaltet und zum Beimischen des verbrannten Brenngases vom Anodenausgang der Brennstoffzellen in den Kathodengasstrom unter Verbrennung der brennbaren Restbestandteile des beigemischten verbrannten Brenngases ausgebildet. Der Vorteil hiervon ist die Nutzung der restlichen brennbaren Bestandteile des Anodenabgases (Brenngases) und die Bereitstellung der für die Kathoden der Brennstoffzellen notwendigen Mengen an CO_2 .

Gemäß einer weiteren Ausführungsform ist die katalytische Verbrennungseinrichtung bezüglich der Gasströmung der Brennstoffzellenanordnung nachgeschaltet und die Reformierungseinrichtung ihrerseits der katalytischen Verbrennungseinrichtung nachgeschaltet. Der Vorteil hiervon ist die Nutzung der in der katalytischen Verbrennungseinrichtung freigesetzten Wärmeenergie für den Reformierungsprozeß in der nachgeschalteten Reformierungseinrichtung.

Von besonderem Vorteil ist es, wenn die vorgenannte Ausführungsform noch dadurch weitergebildet wird, daß die Reformierungseinrichtung als Wärmetauscher-Reformiereinheit zur Übertragung der zur Reformierung benötigten thermischen Energie an das zu reformierende Brenngas aus dem heißen Abgas der katalytischen Verbrennungseinrichtung ausgebildet ist. Hierdurch wird die thermische Ausnutzung der in der katalytischen Verbrennungseinrichtung freiwerdenden Energie weiter verbessert.

Gemäß einer anderen Ausführungsform ist es vorgesehen, daß die Gasströme vom Anodenausgang und vom Kathodenausgang der Brennstoffzellen unmittelbar nach den Brennstoffzellen zusammengefaßt werden, wodurch sich vorteilhafterweise ein pneumatischer Kurzschluß ergibt, so daß jeglicher Differenzdruck zwischen den

Gasströmen in der Brennstoffzellenanordnung v mieden wird, welche Differenzdrücke sonst zerstörerische Auswirkungen haben können.

- 5 Gemäß einer weiteren Ausführung ist es vorgesehen, daß eine zur Vorwärmung des Brenngases dienende Brenngasvorwärmeinrichtung in die Wärmetauscher-Reformereinheit integriert ist. Dies hat den Vorteil, daß die Temperatur in der Reformierungseinrichtung weiter erhöht wird, wodurch sich ein noch besserer Reformie-
- 10 rungswirkungsgrad ergibt, da dieser umso höher ist, je heißer die Reformierungseinheit betrieben wird.

- Gemäß einer anderen vorteilhaften Ausführungsform ist es vorge-
- 15 sehen, daß die katalytische Verbrennungseinrichtung, die Wärmetauscher-Reformereinheit und die Brenngasvorwärmungseinrichtung als eine integrierte Einheit ausgebildet sind, in der ein rekuperativer Wärmeübergang der bei der katalytischen Verbrennung erzeugten thermischen Energie durch Metall in eine Reformier-
- 20 zone der integrierten Einheit erfolgt. Auch hierdurch wird vorteilhafterweise die Temperatur beim Reformierungsprozeß erhöht und der Wirkungsgrad verbessert.

- Gemäß einer anderen Ausführungsform ist es vorgesehen, daß weiterhin ein Wärmetauscher zur Auskoppelung von Nutzwärme aus dem
- 25 Gasstrom innerhalb des Schutzgehäuses angeordnet ist. Hierdurch wird der Schaltungsaufwand an der Anlagenperipherie weiter vereinfacht.

- Gemäß einer weiteren Ausführungsform ist eine innerhalb des
- 30 Schutzgehäuses angeordnete und durch einen außerhalb des Schutzgehäuses befindlichen Antrieb angetriebene Gebläseeinrichtung zur Umwälzung des Kathodengasstroms vorgesehen. Dies kann dadurch weitergebildet sein, daß die Gebläseeinrichtung in Strömungsrichtung vor d r Brennstoffzellenanordnung angeordnet
- 35 und mit den Kathoden ingängen gekoppelt ist. Hierdurch wird die

strömungstechnische Verschaltung innerhalb d s Moduls wesentlich vereinfacht.

Die beiden vorgenannten Ausführungsformen können weiterhin dadurch ausgestaltet sein, daß die Gebläseeinrichtung mit ihrem Antrieb über eine durch das Schutzgehäuse geführte Kraftübertragungseinrichtung, insbesondere eine Antriebswelle gekoppelt ist, über die Frischluft von außerhalb des Schutzgehäuses unter Kühlung der Kraftübertragungseinrichtung in den Kathodengasstrom eingeführt wird. Hierdurch wird die thermische Belastung der Gebläseeinrichtung vermindert und dadurch deren Standzeit wesentlich verbessert.

Gemäß einer besonders vorteilhaften Ausführungsform kann es vorgesehen sein, daß die katalytische Verbrennungseinrichtung durch eine auf der gasseitigen Oberfläche des Wärmetauschers aufgebrachte katalytisch wirksame Beschichtung gebildet ist, wobei das zu verbrennende Anodengas (Brenngas) dem Kathodengasstrom vor oder in dem Wärmetauscher beigemischt wird. Die beträchtlichen Vorteile dieser Ausführungsform sind, daß der katalytische Brenner entfällt, daß die Verbrennungswärme der Brenngasreste direkt auf der Wärmetauscheroberfläche freigesetzt und somit ein optimaler Übergang in den Nutzwärmekreislauf gewährleistet ist, und daß die katalytische Substanz optimal gekühlt und deren Überhitzung sicher vermieden wird.

Di s kann dadurch weitergebildet sein, daß die katalytisch wirksame Beschichtung durch eine Nickelschicht gebildet ist. D r Vorteil hiervon ist eine besonders kostengünstige Herstellung der katalytischen Verbrennungseinrichtung.

Gemäß der vorliegenden Erfindung ist es vorgesehen, daß die in d m Schutzgehäuse zusammengefaßt n Komponenten ine baulich Einheit bilden. Hierdurch wird ine hohe Wirtschaftlichkeit bei

der Herstellung des Brennstoffzellenmoduls und beim Bau der Brennstoffzellenanlage gewährleistet.

5 Schließlich ist es gemäß der vorliegenden Erfindung vorgesehen, daß der Brennstoffzellenmodul mit weiteren Modulen zur Bildung größerer Brennstoffzellenanlagen koppelbar ist. Hierdurch ist es vorteilhafterweise möglich, auch größere Anlagen durch modularen Aufbau kostengünstig herzustellen.

10 Im folgenden wird zunächst der herkömmliche Aufbau einer Brennstoffzellenanlage und dann ein Ausführungsbeispiel der Erfindung anhand der Zeichnung erläutert.

Es zeigen:

15

Fig. 1 ein Blockschaltbild eines Beispiels einer Brennstoffzellenanlage mit einem Brennstoffzellenmodul gemäß einem Ausführungsbeispiel der vorliegenden Erfindung;

20 Fig. 2 eine Schnittansicht durch ein Brennstoffzellenmodul gemäß einem weiteren Ausführungsbeispiel der vorliegenden Erfindung;

25

Fig. 3 ein Blockschaltbild einer Brennstoffzellenanlage herkömmlichen Aufbaus.

30

Zunächst soll anhand der Fig. 3 ein Beispiel einer herkömmlich aufgebauten Brennstoffzellenanlage erläutert werden. Ein Brennstoffzellenstapel 4, der durch eine Anordnung von Hochtemperaturbrennstoffzellen mit Alkalikarbonat-Schmelzelektrolyten

35 (MCFC-Zellen) gebildet ist, enthält im Kathodenkreislauf eine

an den Kathodeneingang angeschlossene katalytische Verbrennungseinrichtung 5 sowie zwischen dem Kathodenausgang des Brennstoffzellenstapels 4 und die katalytische Verbrennungseinrichtung 5 geschaltet einen Wärmetauscher 8 zur Nutzwärmeauskoppelung und eine Gebläseeinrichtung 2 zur Aufrechterhaltung des Kathodenkreislaufs. Das letztlich dem Anodeneingang des Brennstoffzellenstapels 4 zuzuführende Brenngas wird zunächst einer Entschwefelungseinrichtung 14 und danach einer Vorreformierungseinrichtung 15 und vor dort über einen Wärmetauscher 17 zur Brenngasvorheizung dem Anodeneingang des Brennstoffzellenstapels 4 zugeführt. Vom Anodenausgang des Brennstoffzellenstapels 4 wird das verbrannte Brenngas über die andere Seite des Wärmetauschers 17 zur Brenngasvorheizung einer Kondensationseinrichtung 9b zugeführt, wo das in dem verbrannten Brenngas enthaltene Wasser abgetrennt wird. Von der Kondensationseinrichtung 9b wird das Wasser zum Teil über einen Dampfgenerator 9a zwischen der Entschwefelungseinrichtung 14 und der Vorreformierungseinrichtung 15 als Dampf in das zugeführte Brenngas beigemischt und im übrigen verworfen. Von der Kondensationseinrichtung 9b wird das verbrannte Anodenabgas zwischen der Gebläseeinrichtung 2 und der katalytischen Verbrennungseinrichtung 5 in den Kathodengasstrom zugemischt. Aus dem Kathodengasstrom wird das überschüssige Abgas über die Primärseite eines Abgaswärmetauschers 18 an die Umgebung abgegeben. Das abgegebene Abgas wird durch Frischluft ersetzt, die durch ein Frischluftgebläse 12 angesaugt und über die Sekundärseite des Abgaswärmetauschers 18 zwischen der Gebläseeinrichtung 2 und der katalytischen Verbrennungseinrichtung 5 in den Kathodengaskreislauf gemischt wird.

Bei einem solchen herkömmlichen Aufbau einer Anlage mit Hochtemperaturbrennstoffzellen sind somit eine große Anzahl von einzelnen Komponenten gastechnisch und regelungstechnisch miteinander zu verschalten. Dies hat die genannten Nachteile, nämlich daß zum einen beträchtlich Kosten an der Anlagenperipherie

rie entstehen, und zum anderen, daß ein hoher Isolationsaufwand betrieben werden muß, um die Wärmeverluste an den auf hoher Temperatur arbeitenden Anlagenkomponenten und den Leitungsverbindungen dazwischen in Grenzen zu halten.

5

Fig. 1 zeigt ein Blockschaltbild einer Brennstoffzellenanlage mit einem Brennstoffzellenmodul nach einem ersten Ausführungsbeispiel der vorliegenden Erfindung. Ein Brennstoffzellenstapel 4 ist zusammen mit einer katalytischen Verbrennungseinrichtung 5 und einer Wärmetauscher-Reformereinheit 6 von einem Schutzge-
10 häuse 1 umgeben, welches die drei Komponenten 4, 5 und 6 auch gegen die Umgebung thermisch isoliert. Der Brennstoffzellenstapel 4 verfügt über einen Anodeneingang zur Zuführung von Brenngas zu den Anoden der Brennstoffzellen, einen Anodenausgang zur
15 Abführung des verbrannten Brenngases von den Anoden, einen Kathodeneingang zur Zuführung von Kathodengas (Oxidatorgas) zu den Kathoden der Brennstoffzellen, sowie einen Kathodenausgang zur Abführung des verbrauchten Kathodengases von den Kathoden. Der Anodenausgang und der Kathodenausgang sind direkt mit der
20 katalytischen Verbrennungseinrichtung 5 gekoppelt, wo das verbrannte Brenngas dem die katalytische Verbrennungseinrichtung 5 passierenden Kathodengasstrom beigemischt wird. Der Ausgang der katalytischen Verbrennungseinrichtung 5 ist mit dem Eingang der Primärseite der Wärmetauscher-Reformereinheit 6 gekoppelt, deren Ausgang mit der Primärseite eines außerhalb des Schutzge-
25 häuses 1 befindlichen Wärmetauschers 8 zur Auskoppelung der Nutzwärme aus dem Kathodengasstrom verbunden ist. Der Ausgang der Primärseite des Wärmetauschers 8 ist über eine Gebläseeinrichtung 2 mit dem Kathodeneingang des Brennstoffzellenstapels
30 gekoppelt, wodurch der Kathodenkreislauf geschlossen wird. Das in dem Brennstoffzellenstapel 4 zu verbrennende Brenngas wird einer Brenngasvorwärmungseinrichtung 13 zugeführt. Diese ist mit einer Entschwefelungseinrichtung 14 gekoppelt, welche ihrerseits über einen Wärmetauscher 7 zur Brenngasvorwärmung an
35 eine Vorreformierungseinrichtung 15 angeschlossen ist. Der Aus-

gang der Vorreformierungsvorrichtung 15 ist mit dem Eingang der Reformierungseinrichtung in der Wärmetauscher-Reformereinheit 6 gekoppelt, deren Ausgang an den Anodeneingang des Brennstoffzellenstapels 4 angeschlossen ist. Am Ausgang der Vorreformierungseinrichtung 15 zweigt eine Leitung zu einer Gebläseeinrichtung 16 ab, mit der ein Teil des die Vorreformierungseinrichtung 15 verlassenden Gasstroms zum Eingang der Brenngaswärmungseinrichtung 7 zurückgeführt wird. In Richtung des Gasstroms nach dem Wärmetauscher 8 zweigt von der den Wärmetauscher 8 mit der Gebläseeinrichtung 2 verbindenden Leitung eine Leitung ab, die einen Abgasweg 9 bildet, in den ein Dampferzeuger 9a mit ihrer primären Seite und eine Kondensationseinrichtung 9b geschaltet ist. Von der Flüssigkeitsseite der Kondensationseinrichtung 9b führt eine Leitung zur Sekundärseite des Dampferzeugers 9a, um dieser einen Teil des in der Kondensationseinrichtung 9b kondensierten Wassers zur Verdampfung zuzuführen, von wo eine Dampfleitung zurück in den Brenngasweg führt und dort in die Leitung zwischen der Entschwefelungseinrichtung 14 und dem Wärmetauscher 7 zur Brenngasvorwärmung mündet. Das über den Abgasweg 9 aus dem Kathodenkreislauf entnommen Abgas wird durch Frischluft ersetzt, die über ein Frischluftgebläse 12 in die Leitung zwischen dem Nutzwärmetauscher 8 und der Gebläseeinrichtung 2 eingebracht wird.

Das durch die Gebläseeinrichtung 2 geförderte Kathodengas (Oxydatorgas) erreicht den Kathodeneingang des Brennstoffzellenstapels 4 mit einer Temperatur von ca. 570°C, wird durch die Brennstoffzellenreaktionen aufgeheizt und verläßt den Brennstoffzellenstapel 4 mit ca. 650°C. Da an dieser Stelle immer noch genügend Sauerstoff in dem Kathodengas enthalten ist, dient dieses als Oxidans in der katalytischen Verbrennungseinrichtung 5, wo die restlichen brennbaren Bestandteile des vom Anodenausgang des Brennstoffzellenstapels 4 beigemischten Anodenabgas (Brenngases) katalytisch verbrannt und dabei auch das für den Kathodenbetrieb notwendige CO₂ erzeugt wird. Durch

di katalytische Verbrennung wird das Gas w i t r aufgeheizt, da auch das Anodenabgas mit etwa 650 C in den katalytischen Bren-
ner eintritt. Das heiße Produktgas der katalytischen Verbren-
nungseinrichtung heizt im weiteren Verlauf die Wärmetauscher-
5 Reformereinheit, wo die endothermen Reformierreaktionen des Brenngases erfolgen, und gelangt mit einer Temperatur von nicht unter 650°C zu dem Wärmetauscher 8 zur Nutzwärmeauskoppelung. Durch die Auskoppelung der Nutzwärme wird das Kathodengas auf eine Temperatur von nicht weniger als 570°C abgekühlt, wonach
10 es durch Abgabe eines Teils des Kathodenabgases in den Abgasweg 9 und Ersatz desselben durch über das Frischluftgebläse 12 zugeführte Frischluft mit einer Temperatur von etwa 570°C wieder den Kathodeneingang erreicht. Der Gasfluß im Kathodenkreis ist so abzustimmen, daß diese sich als vorteilhaft herausgestellten
15 Temperaturen im wesentlich eingehalten und der Kühlbedarf des Brennstoffzellenstapels 4 gedeckt ist.

Das Brenngas, das zunächst in der Brenngasvorwärmungseinrichtung 13 von Umgebungstemperatur von etwa 25°C auf etwa 400°C
20 aufgewärmt wird, wird nach dem Durchlaufen der Entschwefelungseinrichtung 14 mit einer Temperatur von etwa 390°C dem Wärmetauscher 7 zur weiteren Brenngasvorwärmung auf eine Temperatur von etwa 480°C zugeführt, wonach es die Vorreformierungseinrichtung 15 durchläuft. Bei der Vorreformierungsreaktion kühlt
25 sich das Brenngas von den genannten 480°C auf etwa 368°C ab. Die für die Reformierungsreaktionen erforderliche Dampfmenge wurde dem Brenngas vom Dampferzeuger 9a nach der Entschwefelungseinrichtung 14 zugeführt.

30 Von der Vorreformierungseinrichtung 14 wird das Brenngas der Reformierseite der Wärmetauscher-Reformereinheit 6 zugeführt, wo es erforderlichenfalls aufgeheizt, reformiert und dem Anodeneingang des Brennstoffzellenstapels 4 mit einer Temperatur von etwa 600°C zugeführt wird. Je heißer der Reformierungsprozeß in
35 der Wärmetauscher-Reformereinheit 6 b trieben wird, desto bes-

s r ist der Reformierungswirkungsgrad. Daher ist s besonders günstig, daß die Wärmetauscher-Reformereinheit mit dem von der katalytischen Verbrennungseinrichtung 5 abgegebenen heißen Kathodenkreisgas beheizt wird.

5

Fig. 2 zeigt im Querschnitt ein Brennstoffzellenmodul gemäß einem weiteren Ausführungsbeispiel der Erfindung. In einem Schutzgehäuse 1, das gegen die Umgebung thermisch isoliert ist, sind zwei Brennstoffzellenstapel 4 zu einer Brennstoffzellenanordnung zusammengefaßt, deren Kathodeneingänge über eine Luft-
0 hutz mit einer ebenfalls innerhalb des Schutzgehäuses 1 angeordneten Gebläseeinrichtung gekoppelt ist, die als Axialgebläse ausgebildet ist. Dieses Axialgebläse dient dazu, den Kathodengaskreislauf aufrecht zu erhalten. Die Anodeneingänge der beiden Brennstoffzellenstapel sind über jeweilige seitlich ange-
5 brachte Brenngaszuführungseinrichtungen (Manifolds) 10 mit der Reformierungsseite einer Wärmetauscher-Reformereinheit 6 gekoppelt. Die Anodenausgänge der Brennstoffzellenstapel 4 sind über eine zentrale Gasabführungseinrichtung (Manifold) 11 mit einer
10 katalytischen Verbrennungseinrichtung 5 gekoppelt, deren Ausgang mit dem Eingang der Wärmetauscherseite der Wärmetauscher-Reformereinheit 6 gekoppelt ist. Das Kathodenabgas wird direkt von den Kathodenausgängen an die katalytische Verbrennungseinrichtung 6 abgegeben. Weiterhin sind in dem Schutzgehäuse 1
25 auch ein Wärmetauscher 7 zur Brenngasvorwärmung und ein Wärmetauscher 8 zur Auskoppelung der Nutzwärme aus dem Kathodengasstrom angeordnet.

30

Die Gebläseeinrichtung 2 wird von einem außerhalb des Schutzgehäuses angeordneten Antrieb über eine Welle angetrieben, welche hohl ist, um über die hohle Welle die Frischluft für den Kathodengasstrom zuzuführen. Durch diese Frischluftzufuhr wird die Gebläseeinrichtung 2, insbesondere deren Lagerung gekühlt. Aus dem Kathodengasstrom wird das Abgas über den Abgasweg 9, w l-

cher inen Dampferzeuger 9a und eine Kondensations inrichtung 9b enthält, an die Umgebung abgegeben.

5 Mittels der Gebläseeinrichtung 2 wird der Kathodengasstrom innerhalb des Schutzgehäuses 1 umgewälzt, wobei der Kathodengasstrom von der Gebläseeinrichtung 2 zunächst in die Kathodeneingänge der Brennstoffzellenstapel 4 eintritt und nach deren Passieren als verbrauchtes Kathodenabgas von den Kathodenausgängen in die katalytische Verbrennungseinrichtung 5 eintritt, wo auch
10 der von der Anodengasabführungseinrichtung 11 abgeführte Strom des verbrannten Anodengases (Brenngases) beigemischt wird. In der katalytischen Verbrennungseinrichtung 5 werden die restlichen brennbaren Bestandteile des Anodenabgases verbrannt und dadurch das Gasgemisch im Kathodenkreis weiter erhitzt. In der
15 sich unmittelbar an die katalytische Verbrennungseinrichtung anschließenden Wärmetauscher-Reformereinheit 6 wird die in der katalytischen Verbrennungseinrichtung 5 freigesetzte Wärme dazu verwendet, die endothermen Reformierreaktionen bei hohen Temperaturen durchführen.

20

Der die Wärmetauscher-Reformereinheit 6 verlassende Kathodengasstrom wird dann durch die Primärseite des Wärmetauschers 7 zur Brenngasvorwärmung geführt, über dessen Sekundärseite das darin vorgewärmte Brenngas in die Reformierseite der Wärmetauscher-Reformereinheit 6 geleitet wird. Nach dem Verlassen des
25 Wärmetauschers 7 wird der Kathodengasstrom durch den Wärmetauscher 8 geführt, aus welchem die Nutzwärme ausgekoppelt wird.

Gemäß einem weiteren, in den Figuren nicht eigens darstellten Ausführungsbeispiel kann die katalytische Verbrennungseinrichtung 5 durch eine auf der gasseitigen Oberfläche eines innerhalb des Schutzgehäuses 1 angeordneten Wärmetauschers 8 zur Entkoppelung der Nutzwärme aufgebrachte katalytisch wirksame Beschichtung gebildet sein, wobei das Brenngas vom Anodenausgang dem Kathodengasstrom vor oder in dem Wärmetauscher 8 zugemischt wird. Die katalytisch wirksame Beschichtung kann durch jed n üblichen Katalysator gebildet sein, vorteilhafterweise aber ist sie durch eine Nickelschicht gebildet. Dadurch wird die Funktion der katalytischen Verbrennungseinrichtung und des Wärmetauschers in einer Baueinheit vereint, wobei die Brenngasreste des Anodenabgases dann auf der katalytisch wirksamen Oberfläche des Wärmetauschers verbrennen. Dadurch kann zum einen eine eigens vorgesehene katalytische Verbrennungseinrichtung entfallen und andererseits wird die Verbrennungswärme der Brenngasreste direkt auf der Wärmetauscheroberfläche freigesetzt, so daß ein optimaler Wärmeübergang in den Nutzwärme-kreislauf gewährleistet ist. Weiterhin wird die katalytische Beschichtung optimal gekühlt und dadurch deren Überhitzung und Verschlechterung oder Zerstörung sicher vermieden.

Patentansprüche

5

1. Brennstoffzellenmodul mit einer durch in einem oder mehreren Brennstoffzellenstapeln (4) angeordneten Brennstoffzellen gebildeten und von einem thermisch isolierenden Schutzgehäuse (2) umgebenen Brennstoffzellenanordnung mit einem Anodeneingang zur Zuführung von Brenngas zu den Anoden der Brennstoffzellen, einem Anodenausgang zur Abführung des verbrannten Brenngases von den Anoden, einem Kathodeneingang zur Zuführung von Kathodengas zu den Kathoden der Brennstoffzellen und einem Kathodenausgang zur Abführung des verbrauchten Kathodengases von den Kathoden, wobei die Brennstoffzellenanordnung mit einer katalytischen Verbrennungseinrichtung (5) zur Verbrennung brennbarer Restbestandteile des verbrannten Brenngases sowie einer Reformiereinrichtung (6) zur Reformierung des dem Anodeneingang der Brennstoffzellen zuzuführenden Brenngases gekoppelt ist,

20

dadurch gekennzeichnet,

daß die katalytische Verbrennungseinrichtung (5) und die Reformierungseinrichtung (6) mit der Brennstoffzellenanordnung in dem thermisch isolierenden Schutzgehäuse (1) zusammengefaßt angeordnet sind.

25

2. Brennstoffzellenmodul nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytische Verbrennungseinrichtung (5), die Reformierungseinrichtung (6) und die Brennstoffzellenanordnung ohne den Strömungsquerschnitt zwischen diesen Komponenten verengende Rohrleitungen direkt miteinander verbunden sind.

30

3. Brennstoffzellenmodul nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytische Verbrennungseinrichtung (5)

35

in den Kathodenkreislauf zwischen dem Kathodenausgang und dem Kathodeneingang der Brennstoffzellen geschaltet ist, und daß die katalytische Verbrennungseinrichtung (5) zum Beimischen des verbrannten Brenngases vom Anodenausgang in den Kathodengasstrom unter Verbrennung der brennbaren Restbestandteile des beigemischten Brenngases ausgebildet ist.

4. Brennstoffzellenmodul nach Anspruch 1, 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytische Verbrennungseinrichtung (5) bezüglich der Gasströmung der Brennstoffzellenanordnung (4) nachgeschaltet und die Reformierungseinrichtung (6) der katalytischen Verbrennungseinrichtung (5) nachgeschaltet ist.

5. Brennstoffzellenmodul nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Reformierungseinrichtung (6) als Wärmetauscher-Reformereinheit zur Übertragung der zur Reformierung benötigten thermischen Energie an das zu reformierende Brenngas aus dem heißen Abgas der katalytischen Verbrennungseinrichtung (5) ausgebildet ist.

6. Brennstoffzellenmodul nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Gasströme vom Anodenausgang und vom Kathodenausgang der Brennstoffzellen unmittelbar an der Brennstoffzellenanordnung zusammengeführt werden, so daß jegliche Druckdifferenz zwischen den Gasströmen in den Brennstoffzellen vermieden wird.

7. Brennstoffzellenmodul nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß eine zur Vorwärmung des Brenngases dienende Brenngasvorwärmungseinrichtung (7) in die Wärmetauscher-Reformereinheit (6) integriert ist.

8. Brennstoffzellenmodul nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytische Verbrennungseinrichtung (5), die Wärmetauscher-Reformereinheit (6) und die

Brenngasvorwärmungseinrichtung (7) als eine integrierte Einheit ausgebildet sind, in der ein rekuperativer Wärmeübergang der bei der katalytischen Verbrennung erzeugten thermischen Energie durch Metall in eine Reformierzone der integrierten Einheit erfolgt.

9. Brennstoffzellenmodul nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß weiterhin ein Wärmetauscher (8) zur Auskoppelung von Nutzwärme aus dem Kathodengasstrom innerhalb des Schutzgehäuses (1) angeordnet ist.

10. Brennstoffzellenmodul nach einem der Ansprüche 1 bis 9, gekennzeichnet durch eine innerhalb des Schutzgehäuses (1) angeordnete und durch einen außerhalb des Schutzgehäuses (1) befindlichen Antrieb angetriebene Gebläseeinrichtung (2) zur Umwälzung des Kathodengasstroms.

11. Brennstoffzellenanordnung nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Gebläseeinrichtung (2) in Strömungsrichtung vor der Brennstoffzellenanordnung angeordnet und mit dem Kathodeneingang gekoppelt ist.

12. Brennstoffzellenmodul nach Anspruch 10 oder 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Gebläseeinrichtung (2) mit ihrem Antrieb über eine durch das Schutzgehäuse (1) geführte Kraftübertragungseinrichtung, insbesondere eine Antriebswelle, gekoppelt ist, über die Frischluft von außerhalb des Schutzgehäuses (1) unter Kühlung der Kraftübertragungseinrichtung in den Kathodengasstrom eingeführt wird.

13. Brennstoffzellenmodul nach einem der Ansprüche 9 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytische Verbrennungseinrichtung (5) durch eine auf der gaseitigen Oberfläche des Wärmetauschers (8) aufgebrachte katalytisch wirksame Beschichtung

gebildet ist, wobei das Brenngas vom Anodenausgang dem Kathodengasstrom vor oder in dem Wärmetauscher (8) beigemischt wird.

- 5 14. Brennstoffzellenmodul nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytisch wirksame Beschichtung durch eine Nickelschicht gebildet ist.

10

15

20

25

30

35

Fig. 1

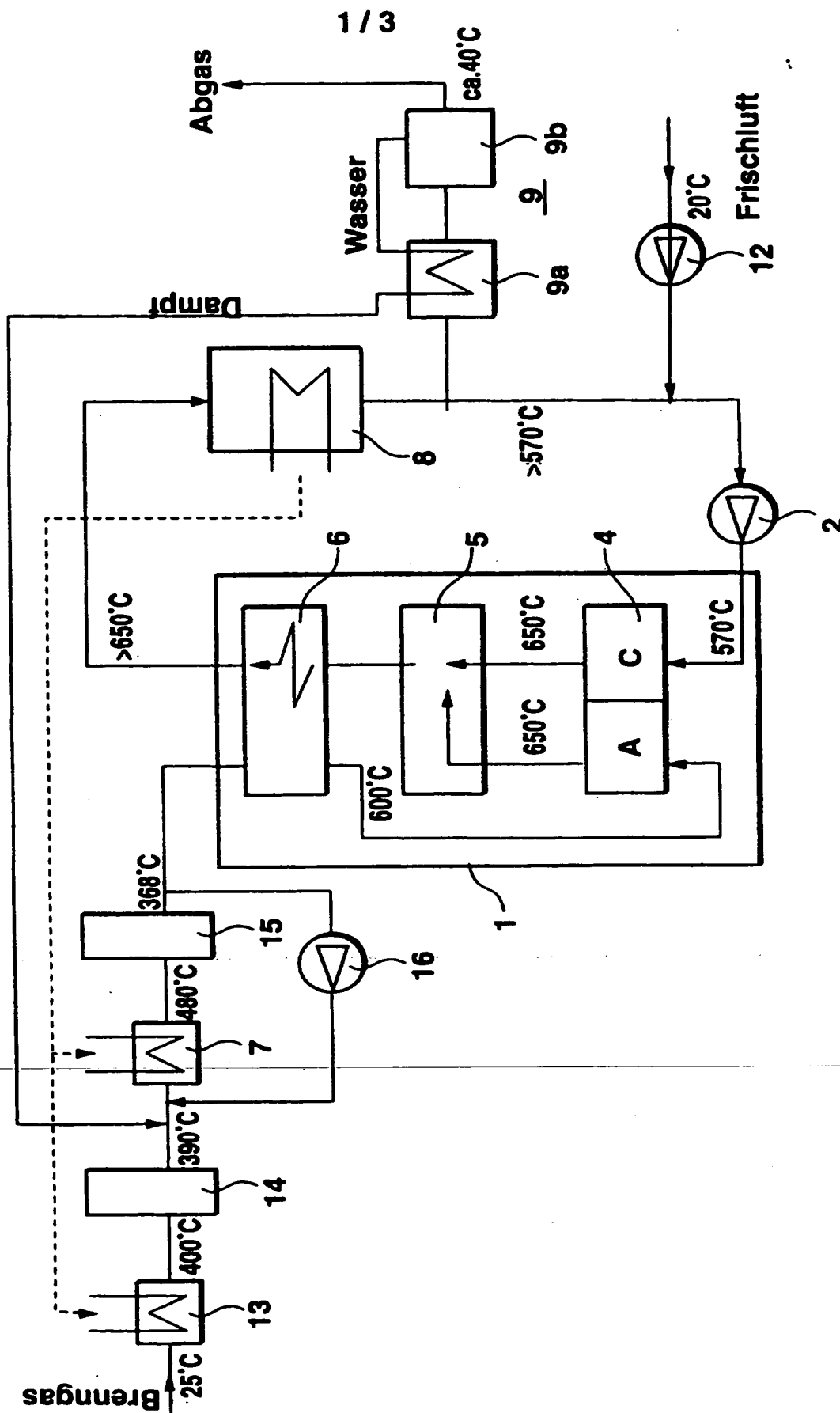


Fig. 2

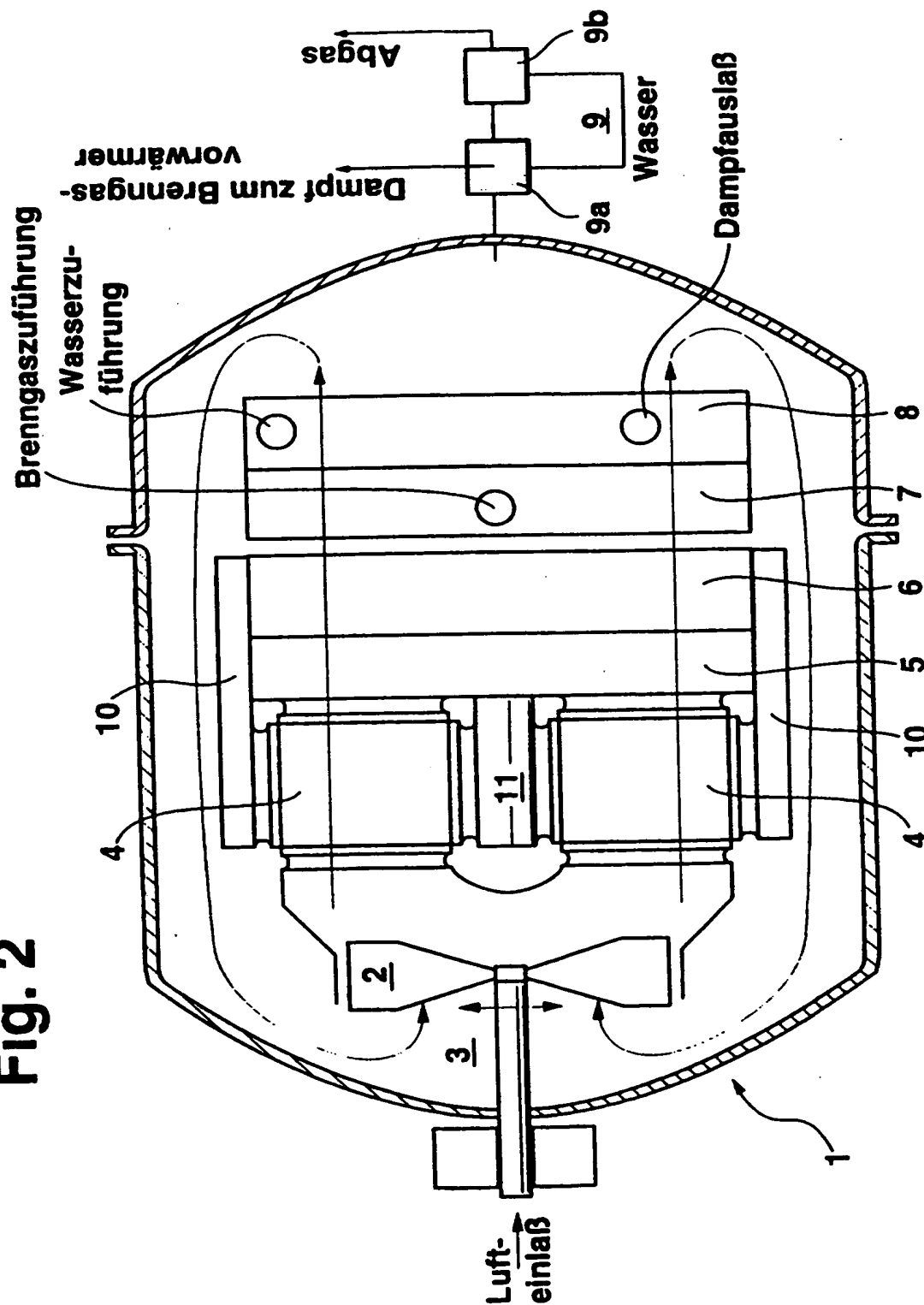
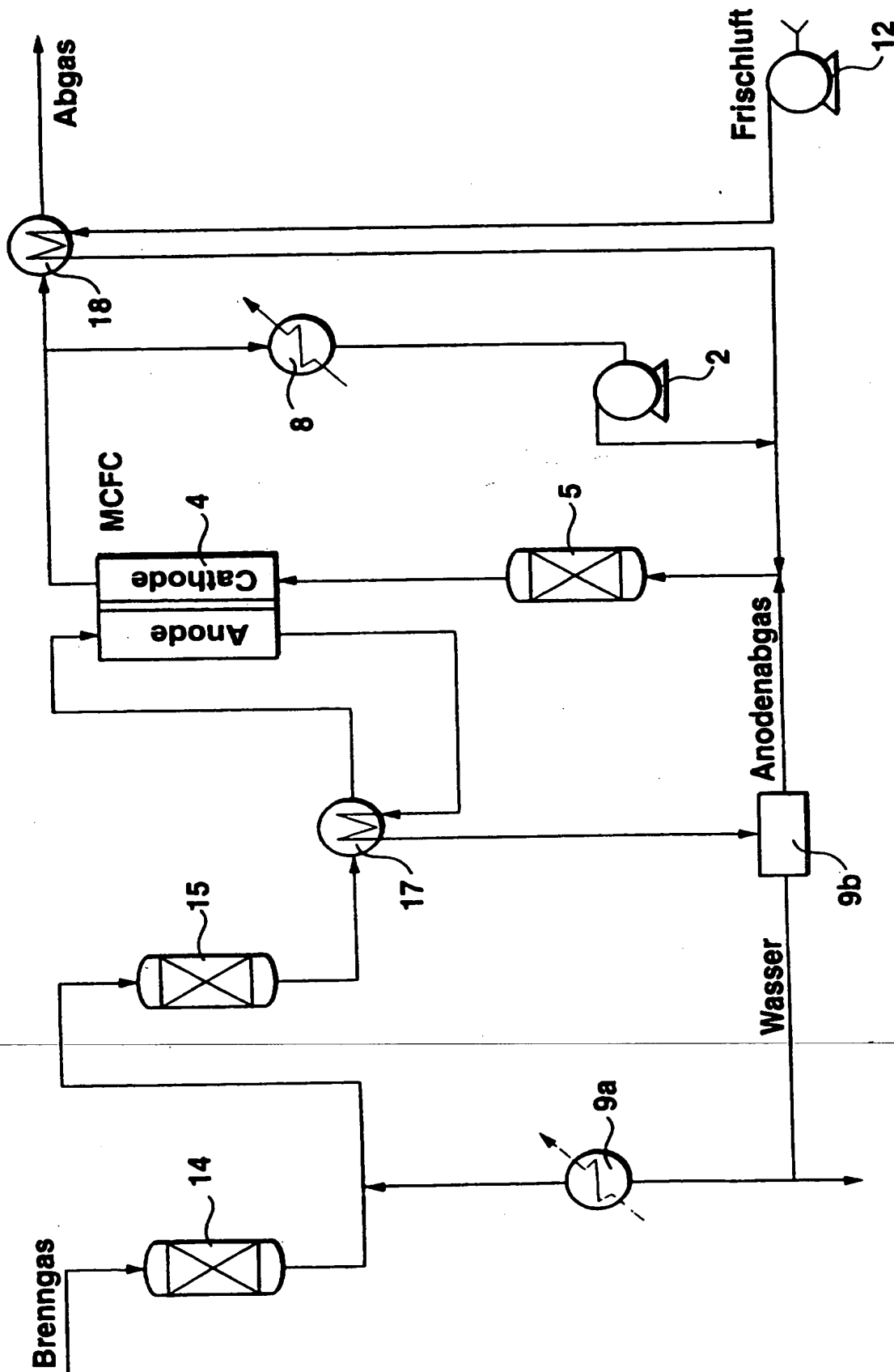


Fig. 3



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 95/04951

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 IPC 6 H01M8/02 H01M8/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US,A,5 084 363 (REISER CARL A) 28 January 1992 see column 2, line 53 - column 4, line 2 see figure 2 see claims 1-9	1-7
Y	---	8-14
Y	US,A,5 340 664 (HARTVIGSEN JOSEPH J) 23 August 1994 see column 2, line 17-55 see column 3, line 42 - column 4, line 2 see column 4, line 48 - column 5, line 50 see column 6, line 60 - column 7, line 5; figure 1 ---	1-14
	-/-	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- *Z* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

1 April 1996

Date of mailing of the international search report

23.04.96

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
 NL - 2200 HV Rijswijk
 Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
 Fax (+ 31-70) 340-3016

Authorized officer

Engl, H

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 95/04951

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

[illegible]

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 95/04951

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US-A-5084363	28-01-92	WO-A- 9111034	25-07-91
US-A-5340664	23-08-94	NONE	
EP-A-0580918	02-02-94	DE-D- 59204693	25-01-96
US-A-4395468	26-07-83	AU-B- 547846	07-11-85
		AU-B- 7385381	01-07-82
		CA-A- 1164041	20-03-84
		EP-A,B 0055011	30-06-82
		JP-C- 1662689	19-05-92
		JP-B- 3016752	06-03-91
		JP-A- 57113561	15-07-82

INTERNATIONALER RESEARCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 95/04951

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 6 H01M8/02 H01M8/04

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationsymbole)

IPK 6 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US,A,5 084 363 (REISER CARL A) 28.Januar 1992 siehe Spalte 2, Zeile 53 - Spalte 4, Zeile 2 siehe Abbildung 2 siehe Ansprüche 1-9	1-7
Y	---	8-14
Y	US,A,5 340 664 (HARTVIGSEN JOSEPH J) 23.August 1994 siehe Spalte 2, Zeile 17-55 siehe Spalte 3, Zeile 42 - Spalte 4, Zeile 2 siehe Spalte 4, Zeile 48 - Spalte 5, Zeile 50 siehe Spalte 6, Zeile 60 - Spalte 7, Zeile 5; Abbildung 1 ---	1-14
	---	-/-

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"P" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

1.April 1996

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

23.04.96

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+ 31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Beauftragter

Engl, H

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 95/04951

C(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	EP,A,0 580 918 (SULZER AG) 2.Februar 1994 siehe Spalte 1, Zeile 1-5 siehe Spalte 2, Zeile 21 - Spalte 3, Zeile 26 siehe Ansprüche 1-12; Abbildung 1 ---	1-14
A	US,A,4 395 468 (ISENBERG ARNOLD O) 26.Juli 1983 siehe Spalte 3, Zeile 12-19 siehe Spalte 3, Zeile 56 - Spalte 4, Zeile 32 siehe Spalte 6, Zeile 5-9 siehe Spalte 7, Zeile 2-13 siehe Abbildungen 1,4 -----	1-14

INTERNATIONALER RESEARCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationaler Patentzeichen

PCT/EP 95/04951

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US-A-5084363	28-01-92	WO-A- 9111034	25-07-91
US-A-5340664	23-08-94	KEINE	
EP-A-0580918	02-02-94	DE-D- 59204693	25-01-96
US-A-4395468	26-07-83	AU-B- 547846	07-11-85
		AU-B- 7385381	01-07-82
		CA-A- 1164041	20-03-84
		EP-A,B 0055011	30-06-82
		JP-C- 1662689	19-05-92
		JP-B- 3016752	06-03-91
		JP-A- 57113561	15-07-82